(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



- 1 MADER BEGESTEL IN DELECT LEGEL BEGES BEGES I IN IN BELLE SUND HERE BEHLE HELE BEGES BEGESTELLEN HELE HELE

(43) 国際公開日 2004 年8 月12 日 (12.08.2004)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 2004/067626 A1

(51) 国際特許分類7: C08L 23/00, B32B 27/32, B65D 1/00

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2004/000881

(22) 国際出願日:

2004年1月30日(30.01.2004)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ: 特願2003-024600 2003年1月31日(31.01.2003) JP

- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井・デュポンポリケミカル株式会社 (DU PONT-MITSUI POLYCHEMICALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1057117 東京都港区東新橋一丁目5番2号 Tokyo (JP). 東セロ株式会社 (TOHCELLO CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1040031 東京都中央区京橋一丁目3番3号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 佐藤 正史 (SATO, Masanobu) [JP/JP]; 〒2790023 千葉県浦安 市高洲 1 1 - 1 Chiba (JP). 田口 栄一 (TAGUCHI, Eiichi) [JP/JP]; 〒3060213 茨城県猿島郡総和町北利根 9番地東セロ株式会社内 Ibaraki (JP).

- (74) 代理人: 中嶋 重光 (NAKAJIMA, Shigemitsu); 〒 1010053 東京都千代田区神田美土代町 1 1 1 2 ニ チョビル 3 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: RESIN COMPOSITION HAVING EASY-TO-OPEN PROPERTY AND USE THEREOF

(54)発明の名称: 易開封性樹脂組成物及びその用途

(57) Abstract: A resin composition having easy-to-open property, which consists of an ethylene polymer composition (D) comprising 5 to 65 wt% of a propylene polymer (A), 1 to 35 wt% of an ethylene/ α -olefin random copolymer (B) having a density of less than 895 kg/m³, and 10 to 85 wt% of an ethylene polymer (C) having a density of 895 kg/m³ or above (in a total amount of 100 wt%); and films made from the resin composition. The resin composition is useful particularly as lid material for propylene polymer containers and exhibits not only excellent sealing properties and easy-to-open property but also excellent resistances to heat and oil.

(57) 要約: 本発明は、プロピレン系重合体(A) 5~65重量%、密度が895kg/m³未満のエチレン・αーオレフィンランダム共重合体(B) 1~35重量%及び密度が895kg/m³以上のエチレン系重合体(C) 10~85重量%(全体で100重量%)とのエチレン系重合体組成物(D)からなる易開封性樹脂組成物及びそのフィルムに関するものである。このような易開封性樹脂組成物は、とくにプロピレン系重合体容器の蓋材として有用であり、優れた密封性と易開封性を示すとともに耐熱性、耐油性にも優れている。



明細書

易開封性樹脂組成物及びその用途

5 技術分野

本発明は、種々の材料に対し、優れた密封性と易開封性を示す耐熱性、耐油性に優れた易開封性樹脂組成物及びその用途に関する。とりわけプロピレン系重合体層との易剥離性、開封時のソフト感、耐ブロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネ10 ート加工性等に優れた易開封性樹脂組成物、及びそれから構成される熱融着性フィルムや熱融着性積層フィルム、さらには該熱融着性積層フィルムからなる蓋材及びそれを用いた包装体に関する。

15 背景技術

せんべい、ポテトチップス等のスナック菓子包装、あるいはゼリー、ミルク、ヨーグルト、プリン、豆腐、乳酸飲料等の食品包装や、ブリスター包装、その他、医薬品、医療器具、日用品、雑貨等の包装として、ボトル、カップ乃至トレー状のプラスチック容器をプラスチックラミネートフィルム乃至アルミ箔ラミネートフィルムからなる蓋材でシールした包装が広く採用されている。このような包装に要求されることは、流通経路に耐える機械的な強度、衛生性の保持ができるシール強度及び使用時における開封性の良さである。

25 そのような包装に使われる資材の一つとして、一方を易開封性(易剥離性、イージーピール性)フィルムと呼ばれる範疇のフィルムを、最内層である熱融着層とした袋に、あるいは蓋材

に用いた包装体が広く利用されている。しかし、これまで提案されている各種の熱融着層は、密封するためのヒートシール強度は高いが、開封時のイージーピール性は必ずしも十分ではなく、両者の間に適度なバランスをとることが求められている。ここでイージーピール性に求められている特性は、単に開封性の容易さのみならず、開封後に開封部に糸曳き現象等による樹脂断片の付着残留物がなく、開封部の外観の良さをも含めた総合評価であり、それによってその良否が判定されている。

かかる易開封性(易剥離性)を有するフィルムとして、従来 数多くの提案がある。例えば、特公平5-64593号公報に 10 は、易剥離層がポリプロピレン系樹脂とポリエチレン樹脂との 混合物層と高密度ポエチレン樹脂層とからなる易開封性包装体 が、また特公平5-6513号公報には、ポリプロピレンとポ リエチレンとの混合樹脂からなる接着剤層(易剥離層)と支持 15 層(ラミネート層)からなるポリプロピレン容器の蓋材シーラ ントフィルムがそれぞれ提案されている。また特開平2-18 5547号公報には、エチレンーαーオレフィン共重合体、プ ロピレンーエチレン共重合体及び低密度ポリエチレンからなる 易開封性ヒートシール用樹脂組成物が、さらに特開2000-3 5 5 3 5 8 号公報には、ポリプロピレン系樹脂、密度が9 3 20 Okg/m³以下のエチレン・αーオレフィンランダム共重合 樹脂及びポリエチレン樹脂組成物からなるシール層を有する多 層シートがそれぞれ提案されている。しかしながら、単にポリ プロピレン系樹脂とポリエチレン樹脂との混合物層を熱融着層 としたフィルムは、未だ密封性と易開封性のバランスの点で必 25 ずしも満足できるものではない。

とくに近年、包装容器素材として透明性、耐熱性、衛生性、

強度、コストなどを勘案してプロピレン系重合体が多用されるようになってきており、また内容物の種類によっては、包装充填後に高温滅菌処理することが行なわれるようになってきている。そのためプロピレン系重合体に対して、密封性と易開封性のバランスが優れると共に、耐熱性に優れる、すなわち高温滅菌処理時の包装体内部の空気膨張に耐えるシール強度を保有し、しかも高温処理によるシール強度の変動が少ないという易開封性熱融着材料が強く求められているが、上記各提案のものはこれら要請に応えるものではなかった。

10 そこで本発明者らは、上記要求性能を全て満足し、とくにプロピレン系重合体に対して密封性、易開封性、開封時の外観に優れ、ヒートシール強度の温度依存性が少なく、また高温減菌処理によってもシール強度の変動が少ない易開封性熱融着材料を開発すべく検討を行なった。その結果、プロピレン系重合体とエチレン・αーオレフィンランダム共重合体を添加したエチレン系重合体組成物を使用することにより、プロピレン系重合体層との易剥離性、開封時のソフト感、耐ブロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネート加工性に優れた易剥離性熱融着材料が得られることが分かり、本発20 明に到達した。

発明の開示

25

5

本発明は、プロピレン系重合体 (A) 5 \sim 6 5 重量%、密度が8 9 5 kg/m³未満のエチレン・ α - オレフィンランダム共重合体 (B) 1 \sim 3 5 重量%及び密度が8 9 5 kg/m³以上のエチレン系重合体 (C) 1 0 \sim 8 5 重量% (全体で1 0 0 重量%) とのエチレン系重合体組成物 (D) からなることを特

4

徴とする易開封性樹脂組成物、それからなる熱融着性フィルム、かかる熱融着性フィルムの片面にラミネート層及び/又は基材層が積層されてなる熱融着性積層フィルム、容器蓋材及びそれを用いた包装体に関する。

5

発明を実施するための好適な形態

以下、本発明を詳細に説明する。

プロピレン系重合体(A)

本発明に係わるプロピレン系重合体(A)は、一般にポリプ ロピレンの名称で製造・販売されている樹脂で、通常、密度が 10 890~930kg/m³程度のプロピレンの単独重合体若し くはプロピレンと他の少量のαーオレフィンとの共重合体であ る。共重合体においては、ランダム共重合体であってもブロッ ク共重合体であってもよい。プロピレンの共重合体における他 15 0 α - オレフィンとしては、エチレン、1 - ブテン、1 - ペン テン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、4-メチル -1-ペンテンなどの炭素原子数が2~20程度のα-オレフ ィンを例示することができる。このような他のα-オレフィン は、1種単独で又は2種以上組合わせて共重合させてもよい。 20 これらプロピレン系重合体の中では、プロピレンとαーオレ フィンのランダム共重合体、とりわけプロピレンと炭素原子数 が2~4のα-オレフィンのランダム共重合体、例えばエチレ ン 及 び / 又 は 1 - プ テ ン の 含 量 が 2 0 モ ル % 以 下 、 好 ま し く は 1 0 モル % 以下のランダム共重合体を使用することが好ましい。 また熱融着材料として充分な耐熱性を付与するためには、示差 25 走査熱量計(DSC)に基づく融点が125℃以上、とくに1 30~170℃の高結晶性のランダム共重合体であることが好

ましい。また耐熱性、押出加工性などを考慮すると、メルトフ $\square - \nu - \rangle$ (MFR) (ASTM D1238, 230°C, 2 160g荷重)が0.01~100g/10分、好ましくは0. 1~70g/10分のものを使用するのが好ましい。このよう なプロピレン系重合体は、例えば、典型的には固体状チタン触 5 媒成分と有機金属化合物触媒成分から形成される触媒、あるい はこれら両成分及び電子供与体から形成される触媒、若しくは メタロセン触媒を代表例とするシングルサイト触媒の存在下で プロピレンを重合するかあるいはプロピレンと1種以上の他の αーオレフィンを共重合することによって得ることができる。 10 プロピレン系重合体(A)としてはまた、2種以上組合せて使 用することができる。尚、本発明に係わるプロピレン系重合体 (A) の密度は、ASTM D1505に準拠し、アニールな しで密度勾配管法により測定した。

15 x エチレン・ α - オレフィンランダム共重合体(B)

本発明に係わるエチレン・αーオレフィンランダム共重合体(B)は、密度が895kg/m³未満、好ましくは875~890kg/m³のエチレンと炭素数3~10のαーオレフィン、例えばプロピレン、1ープテン、1ーヘプテン、1ーヘキンのえばプロピレン、1ープテン、1ーペンテンなど、好ましくは炭素数4以上、更に好ましくは4~10のαーオレフィンとのランダム共重合体である。ランダム共重合体(B)としてはまた、樹脂組成物の熱融着特性を考慮すると、好ましくはエチレン含有量が70~95モル%、更に好ましくは80~93年ル%、特に好ましくは85~93モル%の範囲にあり、X線による結晶化度が好ましくは40%以下、より好ましくは5~40%、更に好ましくは7~30%の範囲にあり、ゲル浸透ク

ロマトグラフィー(GPC)で測定した分子量分布(重量平均 分子量 (Mw)/数平均分子量 (Mn)) が好ましくは3以下、 更に好ましくは2.5以下であり、好ましくは示差走査熱量計 (DSC) による昇温速度 1 0 ℃ / 分での吸熱曲線から求めた 融点が40~100℃、更に好ましくは60~90℃のものが 5 好適である。ランダム共重合体(B)としてはさらに樹脂組成 物の加工性、耐油性等を考慮すると、MFR(ASTM 238、190℃、2160g荷重)が、好ましくは0.01 $\sim 20 g / 10 分$ 、更に好ましくは $0.1 \sim 10 g / 10 分の$ 10 範囲のものが好適である。このような共重合体は、例えば遷移 金属化合物触媒成分、例えばバナジウム化合物やジルコニウム 化合物と、有機アルミニウム化合物触媒成分とからなる触媒あ るいはメタロセン触媒を代表例とするシングルサイト触媒を用 いて、エチレンとαーオレフィンを共重合することによって得 ることができる。これらランダム共重合体(B)は、2種以上 15 組み合わせて使用することができる。尚、本発明に係わるエチ レン・α - オレフィンランダム共重合体 (B) の密度は、 A S T M D 1 5 0 5 に 準 拠 し 、 ア ニ ー ル な し で 密 度 勾 配 管 法 に よ り測定した。

20 エチレン系重合体 (C)

25

本発明に係わるエチレン系重合体(C)は、密度が895k g/m^3 以上、好ましくは $900\sim970kg/m^3$ のエチレンの単独重合体若しくはエチレンと少量の炭素数が $3\sim10$ の α -オレフィン、例えばプロピレン、1-ブテン、1-ヘプテン、1-ヘキセン、1-オクテン、4-メチル-1-ベンテンなどとのランダム共重合体であって、いわゆる、高圧法低密度ポリエチレン(HP-LDPE)、直鎖状あるいは線状低密度

ポリエチレン (LLDPE)、中密度ポリエチレン (MDPE)、 高密度ポリエチレン(HDPE)と呼ばれているエチレン単独 重合体若しくはエチレン・αーオレフィン共重合体、更にはエ チレンと少量の極性モノマーとの共重合体、例えばエチレン・ 酢酸ビニル共重合体、エチレンと不飽和カルボン酸、例えばア 5 クリル酸、メタクリル酸、マレイン酸モノエチル、無水マレイ ン酸などとの共重合体又はそのNa、Li、ZnもしくはMg などのアイオノマー、エチレンと不飽和カルボン酸エステル、 例えばアクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸イソ ブチル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸-2-エチルヘキ 10 シル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸グリシジル、マレイ ン酸ジメチルなどとの共重合体、エチレンと上記のような不飽 和カルボン酸と不飽和カルボン酸エステルの共重合体又はその Na、Li、ZnもしくはMgなどのアイオノマー、エチレン 15 と ― 酸 化 炭 素 と 任 意 に 不 飽 和 カ ル ボ ン 酸 エ ス テ ル や 酢 酸 ビ ニ ル との共重合体等のエチレンを主体とした重合体である。これら エチレン系重合体 (C) は、単一の重合体であっても、 2 種以 上のエチレン系重合体との組成物(混合物)であってもよい。 エチレン系重合体 (C) のMFR (ASTM D1238、 190℃、2160g荷重)は、プロピレン系重合体(A)及 20 びエチレン・αーオレフィンランダム共重合体(Β)と混合し て エ チ レ ン 系 重 合 体 組 成 物 (D) に し た 際 に 、 フ ィ ル ム 形 成 能 がある限り特に限定はされないが、通常、0.01~100g /10分、好ましくは0.1~70g/10分の範囲にある。 かかるエチレン系重合体(C)としては、エチレンとαーオ 25 レフィンとの共重合体を使用することが好ましく、特に、密度

が $895\sim925$ kg/m³、好ましくは $900\sim925$ kg

20

25

/m³の低密度ポリエチレン、密度が925kg/m³を越え、940kg/m³までの中密度ポリエチレン、若しくは密度が940kg/m³を越え、970kg/m³までの高密度ポリエチレンが好適であり、密度が895~925kg/m³の低密度ポリエチレン、密度が925kg/m³を越え、940kg/m³までの中密度ポリエチレンが最も好ましい。また低密度ポリエチレンの中では線状低密度ポリエチレンが好適である。

前記、線状低密度ポリエチレン(LLDPE)としては、ゲル透過クロマトグラフィー(GPC)によって測定した分子量 10 分布(Mw/Mn)が通常1.5~4.0、好ましくは1.8 ~3.5の範囲にある。線状低密度ポリエチレン(LLDPE) はまた、示差走査熱量計(DSC)の昇温速度10℃/分で測 定した吸熱曲線から求めた鋭い吸熱ピークが1個ないし複数個 あり、該ピークの最高温度、すなわち融点が通常70~130℃、 15 好ましくは80~120℃の範囲にある。

上記のような線状低密度ポリエチレン(L L D P E)は、チーグラー型触媒を代表例とするマルチサイト触媒、メタロセン触媒を代表例とするシングルサイト触媒を用いた従来公知の製造法により調製することができる。たとえば線状低密度ポリエチレン(L L D P E)は、遷移金属のメタロセン化合物を含む触媒を用いて調製することができる。このメタロセン化合物を含む触媒は、(a)遷移金属のメタロセン化合物と、(b) 有機アルミニウムオキシ化合物と、(c) 担体とから形成されることが好ましく、さらに必要に応じて、これらの成分と(d) 有機アルミニウム化合物および/または有機ホウ素化合物を形成されていてもよい。なお、このようなメタロセン化合物を含むオレフィン重合用触媒、および触媒を用いた線状低密度ポ

10

15

20

25

リエチレン(LLDPE)の調製方法は、たとえば特開平8-269270号公報に記載されている。また本発明に係わるエチレン系重合体(C)の密度は、30分間沸水処理した試料を、JIS K7112のD法(密度勾配管法)により測定した。

エチレン系重合体組成物(D)

本発明のエチレン系重合体組成物(D)からなる易開封性樹脂組成物は、前記プロピレン系重合体(A)が $5\sim6.5$ 重量%、好ましくは $1.0\sim6.0$ 重量%、エチレン・ α -オレフィンランダム共重合体(B)が $1\sim3.5$ 重量%、好ましくは $5\sim3.0$ 重量%及びエチレン系重合体(C)が $1.0\sim8.5$ 重量%、好ましくは $2.0\sim8.0$ 重量%の割合で配合されるものである(但し、(A)、(B)、(C)の合計量を1.0.0 重量%とする)。かかる易開封性樹脂組成物はまた、押出加工性、シール強度、耐熱性等を考慮すると、MFR(ASTM D1238、1.9.0 ℃、2.1.6.0 g荷重)が $0.0.1\sim1.0.0$ g/1.0分、とくに $0.1\sim7.0$ g/1.0分となるように調製されていることが望ましい。

プロピレン系重合体 (A) の配合量が5重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール強度が弱くなり、また耐熱性も低下する。またその配合量が65重量%を越えると、広範囲なシール温度領域において適正なシール強度を示さなくなる。

また上記エチレン・αーオレフィンランダム共重合体(B)の配合量が1重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール性、糸曳き性等が劣る傾向にあり、一方35重量%を越えると加工性が損なわれるようになる。

10

15

20

25

さらにエチレン系重合体 (C) の配合量が10重量%未満では、得られる熱融着性フィルムをプロピレン系重合体層と熱融着した際に、シール強度が強くなりすぎて易開封性に劣るようになり、一方85重量%を越える程多量に配合するとシール強度が弱くなる傾向にある。

本発明の易開封性樹脂組成物には、本発明の目的を損なわな い範囲で各種添加剤を配合することができる。かかる添加剤と してシリカ、タルクなどの無機充填剤、酸化防止剤、耐候安定 剤、帯電防止剤、防曇剤、アンチブロッキング剤、スリップ剤、 顔料等を挙げることができる。とくにエチレン系重合体組成物 (D) 100重量部に対して、無機充填剤を10重量部以下、 好ましくは0.1~5重量部程度配合することにより、押出加 工性、フイルムの滑り性、離ロール性などが改良されるので好 ましい。また有機化合物型のアンチブロッキング剤やスリップ 剤等の配合もフィルム成形時、ラミネート加工時、包装作業時 等における加工性や作業性の向上に有効である。このような有 機化合物型のアンチブロッキング剤やスリップ剤として、例え ばパルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘニン酸アミ ド、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、オレイルパルミドア ミド、ステアリルパルミドアミド、メチレンビスステアリルア ミド、メチレンビスオレイルアミド、エチレンビスオレイルア ミド、エチレンビスエルカ酸アミドなどの各種アミド類、ポリ エチレングリコール、ポリプロピレングリコールなどのポリア ルキレングリコール、水添ひまし油などを例示することができ る。これらの適当な配合量は、エチレン系重合体組成物 (D) 100重量部に対して、0.01~1重量部程度である。上記 のような各種添加剤は、エチレン系重合体組成物の調製時に配

11

合することができるし、予めプロピレン系重合体 (A)、エチレン・αーオレフィンランダム共重合体 (B)及びエチレン系重合体 (C)などの各成分に配合しておくことができる。

熱融着性フィルム

25

本発明の熱融着性フイルムは、上記易開封性樹脂組成物からなるフイルムである。かかる熱融着性フィルムは、種々公知の方法で製造できる。例えば、プロピレン系重合体 (A)、エチレン・αーオレフィンランダム共重合体 (B)及びエチレン系重合体 (C)とを所定割合で混合した後、直接フィルム成形機に投入してエーダイ、環状ダイ等を用いてフィルムにする方法、予めプロピレン系重合体 (A)、エチレン・αーオレフィンランダム共重合体 (B)及びエチレン系重合体 (C)とを所定の20 量で混合して押出機等で溶融混練して易開封性樹脂組成物を得た後、エーダイ、環状ダイ等を用いてフィルム成形する方法が例示できる。

熱融着性フィルムの厚さは、用途に応じて適宜決め得るが、 通常 $1\sim1000\mu$ m、好ましくは $2\sim100\mu$ mの範囲にある。

本発明の熱融着性フィルムは印刷性あるいは基材層等との接着性を改良するために、熱融着性フィルムの表面を、たとえば、

12

コロナ処理、火炎処理、プラズマ処理、アンダーコート処理等 で表面活性化処理を行っておいてもよい。

熱融着性積層フィルム

20

25

本発明の熱融着性積層フィルムは、上記易開封性樹脂組成物 からなる熱融着性フィルムの片面に、ラミネート層及び/又は 5 基材層が積層されてなる。本発明におけるラミネート層とは、 他の熱可塑性樹脂を前記易開封性樹脂組成物と共押出し成形し て得られる熱融着性積層フィルムの他の熱可塑性樹脂からなる 層であり、得られる熱融着性積層フィルムはそのままでも蓋材 として使用できるし、さらに基材層と積層する場合は、かかる 10 層と積層される。ラミネート層を構成する熱可塑性樹脂として は、上記プロピレン系重合体(A)やエチレン系重合体(C) として例示した各種ポリオレフィン系樹脂を使用することがで きる。またこれら各種ポリオレフィン系樹脂と上記本発明の易 開封性樹脂組成物との任意割合の組成物を使用することができ 15 る。

とくに本発明の熱融着性積層フイルムをTーダイ成形法で得る場合は、前記易開封性樹脂組成物は単独では高速製膜性(高速フイルム成形能)に劣る場合があり、その場合は、他の熱可塑性樹脂、好ましくは上記プロピレン系重合体(A)あるくにプロピレン系重合体(C)等のポリオレフィン系樹脂、とくよりでロピレン単独重合体とを共押出し成形することにより、とより高速下でフイルム成形が可能となる。そしてかかるプロピレン単独重合体から形成されるラミネート層を有する熱融着性積層フィルムは、透明性、滑り性に優れ、蓋材として使用して包装体を高温殺菌処理しても十分なシール強度を有し、かつシール強度の低下がなく、また被包装物を取り出す際には開封し易い適

度な易開封性(イージーピール性)を有する。このようなラミネート層は、1層でも2層以上の多層としてもよく、多層の場合は各層で使用する熱可塑性樹脂の種類や性状を異にすることができる。ラミネート層として好適なプロピレン系重合体は、MFR(ASTM D1238、230℃、2160g荷重)が0.01~100g/10分、特に0.1~70g/10分の範囲にある。

本発明の熱融着性積層フィルムは、上記熱融着性フィルム層 とラミネート層からなる積層フイルム、上記熱融着性フイルム 層と基材層とからなる積層フイルムあるいは上記熱融着性フィ 10 ルム層とラミネート層(中間層)と基材層とからなる積層フィ ルムである。基材層としては、機械的強度、剛性、外観等が優 れたものが好ましく、例えば、ポリエチレンテレフタレートに 代表されるポリエステルフィルム、ポリアミドフィルム、ポリ エチレンフイルム、ポリプロピレンフィルム等の熱可塑性樹脂 15 製フィルム、アルミ蒸着ポリプロピレンフイルム、シリカ蒸着 ポリエステルフイルム、酸化アルミ蒸着ポリエステルフィルム、 シリカ・酸化アルミニ元蒸着ポリアミドフィルムなどの複合フ イルム、アルミ箔、紙等が挙げられる。かかる熱可塑性樹脂製 フィルムあるいは複合フイルムとしては、無延伸であっても一 20 軸あるいは二軸延伸のフィルムであってもよく、あるいは一般 にはシートと呼ばれるような厚手のフィルム、その他扁平状基 材であっても良い。勿論、基材層は、1層でも2層以上として もよく、2層以上の場合においては、異種材料や性状の異なる 同種材料を組み合わせて使用することができる。 25

ラミネート層を有する熱融着性積層フィルムにおいては、印 刷性あるいは基材層等との接着性を改良するために、ラミネー

14

ト層の表面を、例えば、コロナ処理、火炎処理、プラズマ処理、アンダーコート処理等で表面活性化処理を行っておいてもよい。

本発明の熱融着性積層フィルムは、種々公知の方法で製造し得る。例えば、ラミネート層及び/又は基材層が熱可塑性樹脂である場合には、熱融着層となる易開封性樹脂組成物とラミネート層及び/又は基材層に用いる樹脂とを多層ダイを用いて共神出しし、熱融着性積層フィルムとしても良い。又、予め得られた基材層に易開封性樹脂組成物あるいは易開封性樹脂組成物とラミネート層を形成する熱可塑性樹脂とを押出しあるいは共神出しラミネートもしくは押出しあるいは共神出しコーティングして熱融着性積層フィルムとしても良い。

本発明の熱融着性積層フィルムの厚さは、用途に応じて適宜 決め得るが、通常、熱融着性フィルム(熱融着層)の厚さが、 1~1000μm、好ましくは2~100μm、ラミネート層の厚さが、19~900μm、好ましくは18~900μm、 ラミネート層が2層の場合は、中間層が18~8000μm、 好ましくは16~800μm、外層が1~1000μm、好ましくは2~100μmの範囲にあり、又、基材層を有する場合は、基材層の厚さは通常、5~100μm、好ましくは9~50μmの範囲にある。熱融着性積層フィルムの全体の厚さが通常、20~1000μm、好ましくは20~1000μmの 範囲にある。

25 容器蓋材

5

10

上記熱融着性フィルムあるいは熱融着性積層フィルムは各種包装材料として使用することができる。好適な包装材料の例と

して、熱融着性フイルム層を容器最内層として用いる容器蓋材がある。容器蓋材として用いる場合は、前記製法で得た熱融着層を備えた単層あるいは多層の熱融着性(積層)フィルム(シートを含む)をそのまま蓋材として用いても良いし、印刷して用いても良い。更に印刷されたあるいはされていない紙、アルミ箔等と貼り合せて蓋材にしても良い。又、用途によっては予め容器形状に合わせてカットして蓋材にしても良い。容器蓋材とする場合には、基材層を設けた熱融着性積層フィルムを使用するのが好ましい。

10 被着体

5

本発明の易開封性樹脂組成物あるいは熱融着性(積層)フィ ルムは、各種被着体に熱融着させることにより熱シール層を形 成させることができる。このような被着体としてプロピレン系 重合体、エチレン系重合体、ポリスチレン、ポリエステル、ポ リカーボネート、ポリ塩化ビニルあるいはそれら重合体の混合 15 物等を例示することができる。これら被着体は、フィルム、シ ート、トレー、カップ、ボトル等、種々の形状のものであるこ とができる。また被着体は、単層でも、これら重合体同士ある いは他の重合体若しくは紙等との共押出し、ドライラミネーシ ョン、押出シラミネーション等による積層体であってもよい。 20 特にプロピレン系重合体を被着体とすると、熱シール層の密封 性、易開封性、耐熱性、耐油性などに優れており好ましい。か かるプロピレン系重合体は、エチレン系重合体組成物(D)に 用いるプロピレン系重合体(A)と同一の範疇のものであるが、 個々の物性は同一であっても異なっていてもよい。例えばプロ 25 ピレン系重合体からなる被着体においては、被包装材料に合わ せてプロピレン系重合体を公知の方法でフィルム、シート、ト

10

15

20

25

レー、カップ、ボトル等の種々の形状に成形したものを使用することができる。フィルム若しくはシートの場合は、上記熱融着性フィルムと同様な方法で製造し得る。トレー若しくはカップの場合は、一旦上記方法でシートを製造した後、真空成形、圧空成形等の熱成形によりトレー、カップ等の容器とすることにより製造し得る。又、カップあるいはボトルの場合は射出成形、射出中空成形(インジェクションブロー)、中空成形等により容器として成形し得る。かかるプロピレン系重合体には、成形性を改良するために、適宜、前記エチレン系重合体(C)を添加しておいてもよい。

包装体

本発明の易開封性樹脂組成物あるいは熱融着性(積層)フイルムを包装材料として使用する場合、熱融着性(積層)フイルムをのものを、例えば、折りたたんで三方シールしたり、2枚の熱融着性(積層)フイルムを四方シールして包装体としてもよい。本発明の包装体と熱シール層を形成して包装体を形成してもよい。本発明の包装体の形状は、被包装材料の形状、形態あるいは用途に応じて種々の形状を取り得る。例えば、フレキシブルな軟包装体としては、熱融着性積層フィルムとからなる三方シール袋に被包装材料を充填した後、口部をヒートシールしてなる包装体等が挙げられる。

[実施例]

次に実施例を挙げて本発明を更に具体的に説明するが、本発明はその趣旨を越えない限りこれらの実施例に制約されるものではない。尚、実施例及び比較例において用いた原料は、以下の通りである。

[原料]

5

10

(1) プロピレン系重合体(A)

PP:プロピレン・エチレン・1-ブテンランダム共重合体(エチレン含有量;3.6モル%(2.4重量%)、1-ブテン含有量;1.9モル%(2.5重量%)、密度;910kg/m³、MFR(230℃);6g/10分)

(2) エチレン・ α -オレフィンランダム共重合体(B)

V L:エチレン・1 - ブテンランダム共重合体(密度; 8 8 6 kg/m³、エチレン含有量; 8 9 . 1 モル%、結晶化度; 1

15 0%、融点;69℃、MFR(190℃);4.0g/10分)(3)エチレン系重合体(C)

L L - 1:直鎖低密度ポリエチレン(密度 9 1 5 k g / m³、 M F R (190℃) 2.0 g / 10分)

L L - 2:直鎖低密度ポリエチレン(メタロセン触媒を用いて 20 製造、密度 9 1 5 k g / m³、M F R (190℃) 4.0 g / 10分)

L L - 3: 直鎖低密度ポリエチレン (密度 9 1 5 k g / m³、M F R (190℃) 15 g / 10分)

L L - 4:直鎖低密度ポリエチレン(メタロセン触媒を用いて 25 製造、密度 8 9 5 k g / m³、M F R (190℃) 4.0 g / 10分)

LD:高圧法低密度ポリエチレン(密度923kg/m³、M

18

FR (190°C) 3.7g/10分)

HD:高密度ポリエチレン (密度954kg/m³、MFR(190°C) 1.1g/10分)

「実施例1~9、比較例1~4]

表 1 に示す配合組成のエチレン系重合体組成物から 5 0 μm のインフレーションフイルムを作成し、これを予め作成した二軸延伸ポリエチレンテレフタレート(O-PET、厚さ 1 2 μm)/低密度ポリエチレン(厚さ 2 0 μm)からなる 2 層構成の積層フイルムの低密度ポリエチレンフイルム面側に、低密度 10 ポリエチレン(厚さ 2 0 μm)を接着層とするサンドイッチラミネーション法により積層し、試験基材を得た。

厚さ300μmのプロピレン系重合体シートにこの試験基材をそのエチレン系重合体組成物面が当接するように重ね合わせ、160℃、圧力0.2MPa、シール時間1.0秒の条件でヒートシールして積層体を得た。この積層体から試験基材部を剥離したときの剥離強度を測定した。また剥離状況として、剥離強度を測定したサンプルのシール部分の糸曳き状態を観察し、糸曳きなし~微少の状態をA、糸曳きの少ない状態をB、糸曳きの多い状態をCとした。これらの結果を表1に併記する。

					茂1	1							
					実施例						光教包	E	}
	7	2	အ	4	က	9	7	∞	6	H	2	3	4
	10	30	99	30	50	40	30	40	40	09	30	40	22
	10	10	10	30	10	30	10	10	10				2
LL-1	80	09	30	40			40		30	40			8
LL-2					40			40				40	
LL-3							20				90		
LL-4											10		
13								10					
鼠						30			20			20	
剥雕強度(N/15mm)	28	18	20	53	20	29	28	28	26	39	25	27	33
	A	A	A	Ą	Ą	В	В	В	Д	Ö	ບ	ບ	၁
	_		_				L						

10

15

20

25

[実施例10]

熱融着層として、PP; 50重量%、VL; 10重量%及びLL-2; 40重量%とを予め溶融混練したエチレン系重合体組成物 (D-5) を用い、ラミネート層として、中間層(中間ラミネート層)及び外層(表面ラミネート層)にプロピレン単独重合体 (PP-1) (融点; 160 °C、MFR (230 °C); 7.0 g/10分)を用い、夫々別々の押出機に供給し、T-ダイ法によって熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層となる構成の3層共押出フィルムからなる熱融着性積層フィルムを成形し、表面ラミネート層にコロナ処理を施した。フィルムの総厚みは 30μ mで、各層の厚みは熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネート層= $3/24/3\mu$ mであった。

厚さ12μmの二軸延伸ポリエチレンテレフタートフィルム (O-PET) と、上記熱融着性積層フイルムのコロナ処理面とをウレタン系接着剤を用いてドライラミネーションによりレスを増加した。厚さ300μmのプロピレン系重合体シートにこの積層フイルムを熱融着層が当接するよートにこの積層フイルムを熱融着層が当接するよートにこの積層フイルムを熱配が当接するよールが当時では、表2に記載の所定の温度で、幅5mmのシールバーを用い、0.2MPaの圧力で1秒間シールした後放やトルールがあり取り、クロスペットを度500mm/分でヒートシール部を剥離し、その強度を対した。またヒートシールした試験片を固度(N/15mm)とした。またヒートシールした試験片を高圧・高温殺菌処理装置を用い、110℃で30分間熱水処理した後の剥離強度についても同様に測定した。また剥離を高圧した試験片のシール部分の剥離状態と系曳き状態を観察した。凝集剥離で糸曳きがないものを◎、界面剥離で糸曳きがないものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きが多いものを○、及び凝集剥離で糸曳きがあいる。

結果を表2に示す。

[実施例11]

実施例 10 において、中間ラミネート層として PP-1 の代わりにプロピレン・エチレンランダム共重合体 (PP-2) (融点 143 \mathbb{C} 、MFR (230 $\mathbb{C})$ 7.0 g/10 分)を使用した以外は、実施例 10 と同様にして熱融着性積層フイルムを作成し、そのヒートシール部の剥離特性を評価した。結果を表 2 に示す。

[実施例12~14]

10 実施例10において、中間ラミネート層として表2に示す組成のものを使用した以外は、実施例10と同様にして熱融着性積層フイルムを作成し、そのヒートシール部の剥離特性を評価した。結果を表2に示す。

表 2

熱融着性積層フィル		実 施 例				
		1 0	1 1	1 2	1 3	1 4
		ルム構成(重	量%)			
素 願 猿	· 層	D-5	D-5	D-5	D-5	D-5
中間層		PP-1	PP-2	PP-1(50) D-5(50)	PP-1(70) D-5(30)	PP-1(60) D-5(40)
表面層・		PP-1	PP-1	PP-1	PP-1	PP-1
剥離強度	(N/15m	m)と剥離り	犬況(熱水ダ	処理前)		
	140°C	13.3 🔾	11.3 0	10.8 0	6.5 🔾	11.0 0
ヒートシール	160℃	17.9 ⊚	17.6 ⊚	16.2 ◎	15.5 ⊚	15.8 ©
温度	180°C	17.1 ◎	16.9 ⊚	16.5 ◎	16.0 ⊚	16.1 ©
	200°C	19.0 ◎	24.2 ×	22.5 ×	16.4 ×	23.5 ×
剥離強度(N/15mm)と剥離状況(熱水処理後)						
	140°C	12.2 0	10.0 0	10.1 0	4.1 0	9.8 0
ヒートシール	160°C	17.1 ⊚	17.4 ⊚	16.1 ⊚	14.8 ⊚	15.5 ◎
温度	180°C	18.1 ⊚	16.5 ⊚	16.3 ⊚	15.3 ⊚	15.9 ©
	200°C	18.9 ⊚	24.0 ×	21.8 ×	16.0 ×	20.5 ×

[実施例15]

熱融着層としてエチレン系重合体組成物(D-5)を、中間 ラミネート層として高密度ポリエチレン (HDPE) (三井化 学(株)製、商品名;ハイゼックス3300F、密度;954 5 kg/m³、MFR (190°); 1. 1g/10分、融点; 131℃) 85重量%と高圧法低密度ポリエチレン (HP-L DPE)(三井化学(株)製、商品名;ミラソン11P、密度; 917kg/m³、MFR (190°); 7.2g/10分、 融点;106℃)15重量%をドライブレンドした組成物を、 10 表面ラミネート層として直鎖低密度ポリエチレン(LLDP E)(三井化学(株)製、商品名;ウルトゼックス1520L、 密度; 9 1 5 kg/m³、MFR (190°); 2.3g/1 0分、融点;115℃)を用い、T-ダイ法によって熱融着層 /中間ラミネート層/表面ラミネート層となる構成の3層共押 15 出フィルムからなる熱融着性積層フィルムを成形し、表面ラミ ネート層にコロナ処理を施した。フィルムの総厚みは30 μm で、各層の厚みは熱融着層/中間ラミネート層/表面ラミネー ト層=4.5/21.0/4.5 μ mであった。

20 次いで得られた熱融着性積層フイルムを実施例 1 0 と同様に、 厚さ 1 2 μ m の O - P E T と積層して物性を評価した。結果を 表 3 に示す。

表 3

		実施例15		
熱融着性積	層フィルム構成(重	量%)		
熱原	港層	D-5		
中	間層	HDPE(85) HP-LDPE(15)	
表	面層	LLDPE		
剥離強度(N	/15mm)と剥離ル	院況(熱水処理前)	
	140°C	13.0 0		
ヒートシール	160°C	21.0 ⊚		
温度	180°C	21.8 ⊚		
·	200°C	. 22.5 ⊚		
剥離強度(N/15mm)と剥離状況(熱水処理後)				
	140℃	13.7 0		
ヒートシール	160°C	20.5 ⊚		
温度	180℃	20.7 ⊚		
	200°C	21.6 ⊚		

表2及び表3から明らかなように、プロピレン系重合体シートに対するヒートシール特性はラミネート層の種類によっても若干影響は受けるが、適切なヒートシール条件を選択すればいずれも熱水処理後においてもヒートシール強度は変わらず、高温減菌処理用の包装材料として有用であることがわかる。とくにラミネート層にプロピレン系重合体を使用した場合には、110℃を越えるような温度で熱水処理をしても透明性が低下することはないので、商品価値の高い包装体を得ることができる。またラミネート層にエチレン系重合体を使用した場合には、ヒートシールの許容温度幅の広い熱融着性積層フィルムとすることができる。

産業上の利用可能性

本発明のプロピレン系重合体 (A)、エチレン・αーオレフ ィンランダム共重合体(B)及びエチレン系重合体(C)との エチレン系重合体組成物である易開封性樹脂組成物は、易開封 性熱融着材料、とくに包装材料の易開封性熱融着材料、とりわ 5 けプロピレン系重合体に対する易開封性熱融着材料として好適 である。また本発明の易開封性樹脂組成物は、それ自体、耐ブ ロッキング性、衛生性、製膜加工性、ラミネート加工性に優れ ており、又、かかる易開封性樹脂組成物からなる熱融着層を備 えた熱融着性 (積層) フィルムをプロピレン系重合体層と熱融 10 着した場合、幅広い温度領域で安定したヒートシール強度(剥 離強度)を有し、且つ剥離時(開封時)に容易に剥離でき、し かもソフト感を有している。したがって、かかる特徴を活かし て、包装用フィルムとして、特に、プロピレン系重合体製のシ ート、トレー、カップ、ボトル等の蓋材として好適であり、せ 15 んべい、ポテトチップス等のスナック菓子包装、あるいはゼリ ー、ミルク、ヨーグルト、プリン、豆腐、乳酸飲料等の食品包 装や、医薬品、医療用器具等の包装、ブリスター包装、その他 日用品や雑貨等の包装の包装材料として好適に用いることがで 20 きる。

請求の範囲

1. プロピレン系重合体(A)5~65 重量%、密度が895 kg/m³未満のエチレン・αーオレフィンランダム共重合体(B)1~35 重量%及び密度が895 kg/m³以上のエチレン系重合体(C)10~85 重量%(全体で100重量%)とのエチレン系重合体組成物(D)からなることを特徴とする易開封性樹脂組成物。

5

15

20

- 2. プロピレン系重合体 (A)が、プロピレン・αーオレフィンランダム共重合体である請求の範囲 1 記載の易開封性樹脂組 10 成物。
 - 3. エチレン・αーオレフィンランダム共重合体(B)が、炭素数4以上のαーオレフィンとのランダム共重合体で、X線による結晶化度が5~40%の範囲にあるエチレン・αーオレフィンランダム共重合体である請求の範囲1記載の易開封性樹脂組成物。
 - 4. エチレン系重合体 (C) が、密度が895~925 kg/m³の低密度ポリエチレン、密度が925 kg/m³を越え、940 kg/m³を越え、10 kg/m³を越え、970 kg/m³までの高密度ポリエチレンである請求の範囲1記載の易開封性樹脂組成物。
 - 5. エチレン系重合体組成物 (D) 100重量部に対して無機 充填剤を10重量部以下の割合で配合してなる請求の範囲1記 載の易開封性樹脂組成物。
- 6. 請求の範囲 1 ~ 5 の何れかに記載の易開封性樹脂組成物か 25 らなるプロピレン系重合体用熱融着材料。
 - 7. 請求の範囲1~5の何れかに記載の易開封性樹脂組成物からなる熱融着性フィルム。

26

- 8. 請求の範囲7記載の熱融着性フィルムの片面にラミネート層が積層されてなる熱融着性積層フィルム。
- 9. ラミネート層がプロピレン単独重合体からなる請求の範囲8記載の熱融着性積層フィルム。
- 5 10.請求の範囲7記載の熱融着性フィルムの片面に、直接又はラミネート層を介して基材層が積層されてなる熱融着性積層フィルム。
 - 11.請求の範囲8若しくは10記載の熱融着性積層フィルムからなる容器蓋材。
- 10 12. 請求の範囲 8~10の何れかに記載の熱融着性積層フィルムとプロピレン系重合体層を有する被着部とからなり、該積層フィルムとプロピレン系重合体層間の熱シール構造を有することを特徴とする包装体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/000881

A CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08L23/00, B32B27/32, B65D1/00						
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC						
B. FIELDS SEARCHED						
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl ⁷ C08L23/00-23/36, B32B27/00-27/42, B65D1/00						
Documento	Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched					
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)						
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT						
Category*						
х	X JP 2000-198170 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 1-12 18 July, 2000 (18.07.00), Full descriptions (Family: none)					
х	JP 2000-191046 A (Mitsubishi 11 July, 2000 (11.07.00), Full descriptions (Family: none)	Chemical Corp.),	1-12			
·						
Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.						
Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed Date of the actual completion of the international search 04 March, 2004 (04.03.04) "A" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such document member of the same patent family Date of mailing of the international search report 16 March, 2004 (16.03.04)						
	nailing address of the ISA/	Authorized officer				
Facsimile N		Telephone No.				

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))					
Int. Cl ⁷ C08L23/00, B32B27/32, B65D1/00					
B. 調査を行った分野					
調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))					
Int. Cl ⁷ CO8L23/00-23/36, B32B27/00-27/42,	B65D1/00 .				
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれる	もの				
国際調査で使用した電子データベース(データベース 	国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)				
C. 関連すると認められる文献					
引用文献の カテゴリー* 引用文献名 及び一部の箇所が関	関連する 連するときは、その関連する箇所の表示 請求の範囲の番号				
X JP 2000-198170 A(三菱化学株 全明細書 (ファミリーなし)	式会社) 2000. 07. 18, 1-12				
X JP 2000-191046 A(三菱化学株	式会社) 2000. 07. 11, 1-12				
全明細書(ファミリーなし)					
□ C欄の続きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別紙を参照。				
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準	の日の後に公表された文献 量を示す 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって				
もの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際	出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論				
以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明				
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献 日若しくは他の特別な理由を確立するために引	用する 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以				
文献 (理由を付す) 上の文献との、当業者にとって自明である 「O」ロ頭による開示、使用、展示等に言及する文献 よって進歩性がないと考えられるもの					
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎とな	よる出願 「&」同一パテントファミリー文献 				
国際調査を完了した日 04.03.2004	国際調査報告の発送日 16.3.2004				
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP)	特許庁審査官(権限のある職員) 4 J 9362 三谷 祥子				
郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	電話番号 03-3581-1101 内線 3494				